

相场法研究初始微结构对晶粒长大的影响^{*}

Phase Field Study on Effect of Initial Microstructure on Grain Growth

罗志荣¹, 卢成健¹, 高英俊^{2**}

LUO Zhirong¹, LU Chengjian¹, GAO Yingjun²

(1. 玉林师范学院物理科学与工程技术学院, 广西玉林 537000; 2. 广西大学物理科学与工程技术学院, 广西南宁 530004)

(1. College of Physics Science and Engineering, Yulin Normal University, Yulin, Guangxi, 537000, China; 2. College of Physical Science and Technology, Guangxi University, Nanning, Guangxi, 530004, China)

摘要:【目的】研究不同初始微结构对晶粒长大过程及生长动力学的影响。【方法】采用相场法(Phase Field)模拟二维多晶材料中正常晶粒长大及初态分别为柱状和梯度微结构的晶粒长大过程。【结果】正常晶粒长大的相对晶粒尺寸分布具有时间不变性的特点;柱状微结构的长宽比和梯度微结构的梯度指数均直接影响晶粒长大动力学,这两种初始微结构在演化过程中均向均匀等轴微结构转变。【结论】晶粒长大是大晶粒不断吞噬相邻小晶粒的过程;晶界曲率对晶粒长大过程有显著影响,曲率越大,晶粒长大越快。

关键词:微结构 晶粒长大 曲率 晶粒尺寸 相场法

中图分类号:TG111 文献标识码:A 文章编号:1005-9164(2016)05-0432-05

Abstract:【Objective】The effects of different initial microstructures on grain growth process and growth dynamics were studied. 【Methods】The growth processes of normal grain, columnar and graded microstructures in two-dimensional polycrystalline materials were studied by phase field method. 【Results】The relative normalized grain size distribution of normal grain growth has time-invariant nature, and the aspect ratio of columnar microstructure and gradient index of graded microstructure directly affect grain growth dynamics, while these two kinds of initial microstructures evolve towards uniform and equiaxed microstructures during grain growth. 【Conclusion】Grain growth is a process in which large grains grow at the expense of their smaller neighbours. Grain boundary curvature has a significant influence on the grain growth process, i. e., the larger the boundary curvature is, the faster the grain grows.

Key words: microstructure, grain growth, curvature, grain size, phase field method

收稿日期:2016-09-09

作者简介:罗志荣(1981—),男,博士,副教授,主要从事材料微结构演化及物理性能的研究。

* 国家自然科学基金项目(51561031),广西自然科学基金项目(2015GXNSFBA139240)和广西高校科研项目(YB2014318)资助。

** 通信作者:高英俊(1962—),男,教授,博士生导师,主要从事材料纳微结构的设计与模拟实验研究,E-mail:gaoyj@gxu.edu.cn。

0 引言

【研究意义】多晶材料的晶粒尺寸直接影响材料的强度、塑性、韧性以及耐腐蚀性等性能,因此研究多晶材料晶粒尺寸的演化规律具有重要意义^[1-2]。【前人研究进展】近年来,随着材料科学与计算机技术的快速发展,利用计算机模拟研究材料微结构演化过程

已成为大趋势。当前,利用计算机模拟晶粒长大的主要模拟方法有蒙特卡洛法(Monte Carlo)^[3-5],元胞自动机法(Cellular Automaton)^[6-7]以及相场法(Phase Field)^[8-12]。在这些模拟方法中,相场法因具有深刻的物理思想,不需要追踪复杂界面的运动等优势而成为强有力模拟方法。1994年,Chen和Yang^[8]构建了单相晶粒长大的相场模型,研究二维晶粒长大过程及晶粒尺寸分布特征。1996年,Chen和Fan^[9]构建了两相晶粒长大的相场模型,研究Al₂O₃-ZrO₂两相晶粒长大过程及微结构特征。2001年,Kazaryan等^[10]利用相场法研究晶界迁移率各向异性对单相晶粒长大的形貌、动力学和拓扑结构的影响。2002年,Krill和Chen^[11]利用相场法研究三维晶粒长大过程及其动力学和拓扑特性。2011年,魏承炀和李赛毅^[12]采用相场法研究单相多晶材料退火过程中,由温度梯度引起的非均匀二维晶粒长大和定向晶粒长大行为。**【本研究切入点】**目前,利用相场法研究初始微结构对晶粒长大过程的影响还鲜有报到。**【拟解决的关键问题】**采用相场法模拟单相多晶材料中正常晶粒及初态分别为柱状和梯度微结构的晶粒长大过程,从晶粒形貌和晶粒尺寸等方面进行分析讨论,揭示晶粒长大的规律。

1 模型与方法

1.1 相场模型

在相场模型中,多晶材料的微结构可用一系列非保守的取向场变量 $\eta_i(r,t)$,($i=1,2,\dots,p$)来表征,其中 p 为晶粒取向个数。这些场变量是空间 r 和时间 t 的连续函数,其值为0~1或-1~0。例如,在第 q 个取向的晶粒中, $\eta_{i=q}=1$ (或-1), $\eta_{i\neq q}=0$;在晶界处, η_i 在0和1(或0和-1)之间连续变化。材料微观结构演化的驱动力来自系统总自由能的降低。系统总自由能 F 可表示为^[8]

$$F = \int_V \left\{ f_0(\eta_1, \eta_2, \dots, \eta_p) + \sum_{i=1}^p \frac{k_i}{2} (\nabla \eta_i)^2 \right\} d^3 r, \quad (1)$$

式中, k_i 为能量梯度系数; f_0 为自由能密度函数,其表达式为^[8]

$$f_0 = \sum_{i=1}^p \left(-\frac{\alpha}{2} \eta_i^2 + \frac{\beta}{4} \eta_i^4 \right) + \frac{\gamma}{2} \sum_{i=1}^p \sum_{j \neq i}^p \eta_i^2 \eta_j^2, \quad (2)$$

式中, α 、 β 和 γ 为正实数,要求 $\gamma > \beta$ 。

由于取向场变量是非保守场变量,它们随时间的演化由Ginzburg-Landau方程组描述^[8]

$$\frac{\partial \eta_i(r,t)}{\partial t} = -L_i \frac{\delta F}{\delta \eta_i(r,t)} = -L_i (-\alpha \eta_i + \beta \eta_i^3 +$$

$$\gamma \eta_i \sum_{j \neq i}^p \eta_j^2 - k_i \nabla^2 \eta_i), i=1,2,\dots,p, \quad (3)$$

式中, L_i 为晶界迁移率。

为求解动力学方程(3),需要在时间和空间上对其进行离散化处理。在时间上,采用显式Euler迭代公式^[8]

$$\eta_i(t + \Delta t) = \eta_i(t) + \frac{d\eta_i(t)}{dt} \Delta t, \quad (4)$$

式中, Δt 为时间步长。

在空间上,对式(3)中的Laplace算子采用九点差分格式离散^[8]

$$\nabla^2 \eta_i = \frac{1}{(\Delta x)^2} \left[\frac{1}{2} \sum_j (\eta_j - \eta_i) + \frac{1}{4} \sum_n (\eta_n - \eta_i) \right], \quad (5)$$

式中, Δx 为空间步长, j 和 n 分别代表 i 的最近邻与次近邻格点。

1.2 参数设置

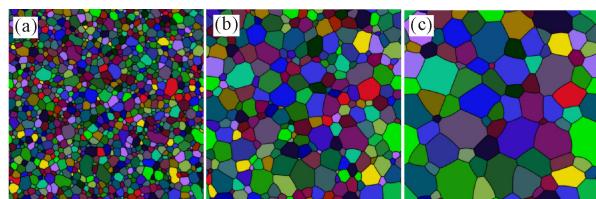
本研究不针对具体材料,所采用的参数均已无量纲化。计算时,将连续空间离散为四方格子,计算区域为512×512 gp(gp表示格子点数)。对于正常晶粒长大,其取向场变量 η_i 的初始值设置为在[-0.001,0.001]之间的随机数。其他参数设置为 $p=36$, $\alpha=\beta=1.0$, $\gamma=2.0$, $L_i=1.0$, $k_i=2.0$, $\Delta x=2.0$, $\Delta t=0.25$ 。对所有格点遍历处理一次后计为一个模拟时间步(ts),并最终模拟出整个晶粒的长大过程。

2 结果与分析

2.1 正常晶粒长大

图1为晶粒长大过程中不同时刻的晶粒组织,其中不同颜色区域表征不同取向晶粒。可见,随着演化的进行,大晶粒逐渐长大,小晶粒逐渐缩小直至消失,使得晶粒数量减小,平均晶粒尺寸增大。由图1还可见,在演化初期,晶界较弯曲,曲率较大,边数大于6的晶粒晶界呈现内凹形状,而边数少于6的晶粒具有凸出的特征。随着演化的进行,晶界在向其曲率中心迁移的过程中逐渐趋于平直,三叉晶界夹角趋于120°,与文献[13]的实验观察结果及晶粒长大理论^[14]吻合。

图2a和b分别为不同演化时间的晶粒尺寸分布和相对晶粒尺寸分布曲线。可见,随着演化时间的增加,晶粒尺寸分布沿大尺寸方向转移(图2a),而相对晶粒尺寸分布基本保持不变,具有自相似性(图2b),与文献[15]的实验结果一致。



(a) 1×10^3 ts; (b) 6×10^3 ts; (c) 2×10^4 ts

图 1 正常晶粒长大过程中的晶粒形貌

Fig. 1 Grain morphology during normal grain growth

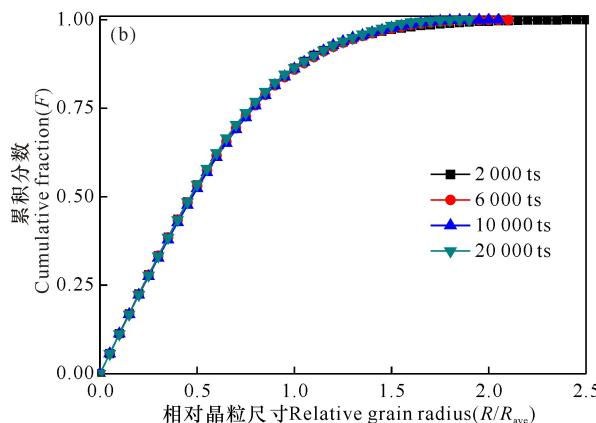
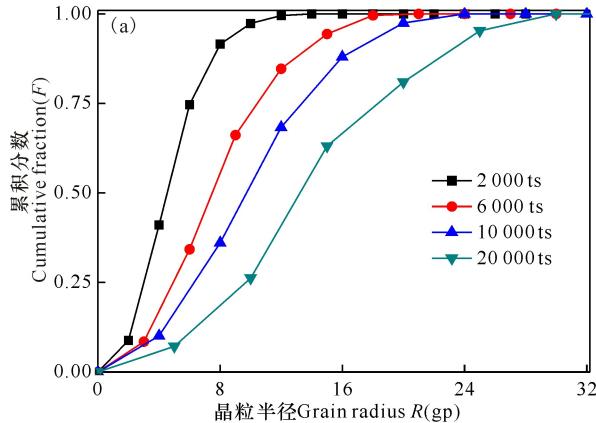


图 2 晶粒长大过程中晶粒尺寸分布(a)和相对晶粒尺寸分布(b)

Fig. 2 Grain size distribution (a) and relative grain size distribution (b) during grain growth

为研究多晶长大过程中单个晶粒的尺寸随时间的变化情况,在晶粒演化到 500 ts 时随机选取 9 个大小各异的晶粒,并监测其面积(晶粒的格点数量)。图 3 为这 9 个晶粒的面积随时间的变化曲线。可见,随着演化的进行,在演化初期尺寸较小的晶粒,其面积一直减小,并在较短时间内消失;而在演化初期尺寸较大的晶粒,一部分持续长大,另一部分在长大到某一时刻面积开始减小,直至完全消失。这说明小晶粒在演化初期就被周围的大晶粒吞噬,而初始晶粒中尺寸较大的晶粒在长大过程中其相邻晶粒不断发生变化,当其被更大尺寸的晶粒包围时,其面积就会减小,直至晶粒消失。只有在长大过程中一直处于优势地位的大晶粒,才能持续长大。

单相多晶系统晶粒演化的驱动力来源于系统界面能的减少,而界面能与晶界长度密切相关^[6]。晶粒长大过程中,晶界总长度随演化时间的变化曲线如图 4 所示。可见,在演化过程中晶界长度不断减小,减小幅度由快变慢。说明在晶粒长大过程中系统界面能不断降低,遵循能量降低原则。

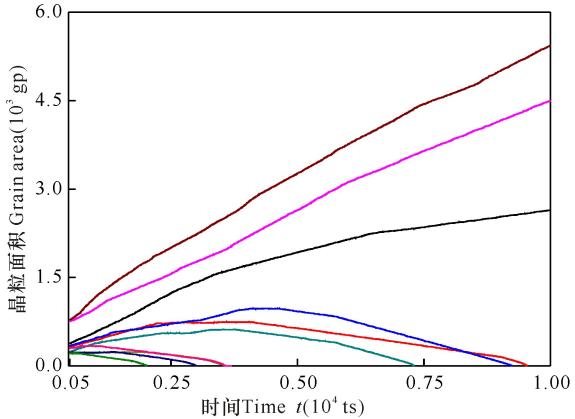


图 3 随机选取的 9 个不同尺寸晶粒的面积与演化时间的关系

Fig. 3 Temporal evolution of the areas of 9 randomly selected grains with different sizes

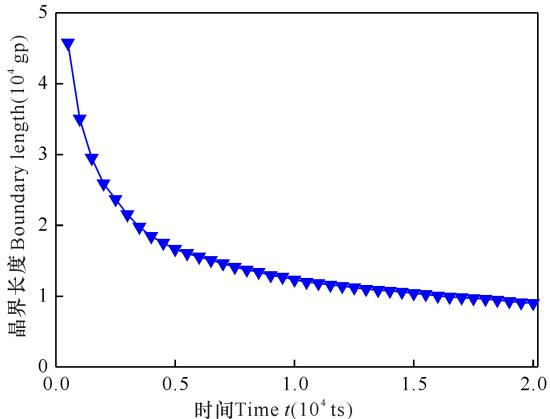


图 4 晶粒长大过程中晶界总长度与演化时间的关系

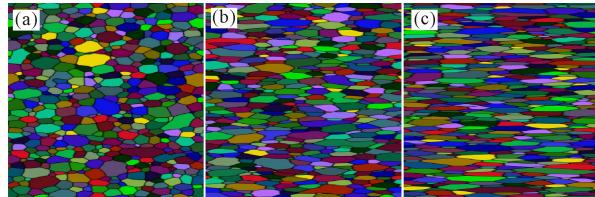
Fig. 4 Total length of grain boundary with time during grain growth

2.2 柱状微结构的晶粒长大

为研究初始状态为柱状晶粒的生长动力学,设置了长宽比不同且平均晶粒尺寸相同(初始平均晶粒尺寸 R_0 为 13 gp)的 3 种初始柱状微结构,如图 5 所示。然后对系统进行均匀退火,即进行正常晶粒演化,所得结果见图 6。

图 6 显示了晶粒长大过程中柱状微结构向等轴微结构转变过程。为定量证实该转变现象,统计了 3 种不同初始长宽比的柱状微结构的平均晶粒尺寸和长宽比与演化时间的关系,如图 7 所示。由图 7a 可见,晶粒尺寸随初始长宽比的增大而增大。这是因为图 5 中晶粒为扁平状或竹节状,其晶界上下方向较平

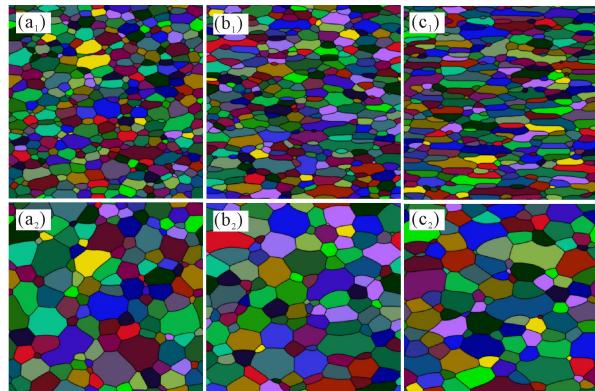
直,而左右方向具有较大曲率,且晶粒长宽比越大,晶粒左右方向的晶界曲率也越大,在演化过程中晶界曲率驱使晶界更快地迁移,晶粒生长就越快。从图7b可以看出,在晶粒演化过程中,晶粒长宽比不断减小,且减小幅度随初始长宽比的增加而增大。该结果与冷轧钢在退火过程中晶粒长宽比随退火时间变化的规律^[16]一致。



(a) Aspect ratio = 2.2; (b) Aspect ratio = 4.4; (c) Aspect ratio = 7.6

图 5 3 种不同长宽比的初始柱状微结构

Fig. 5 Initial columnar microstructures with three different grain aspect ratios



(a₁)~(c₁) 1×10^3 ts; (a₂)~(c₂) 1×10^4 ts; (a₁), (a₂) Initial aspect ratio = 2.2; (b₁), (b₂) Initial aspect ratio = 4.4; (c₁), (c₂) Initial aspect ratio = 7.6

图 6 3 种不同初始长宽比的柱状微结构的演化过程

Fig. 6 Evolution process of columnar microstructures with three different initial aspect ratios

2.3 梯度微结构的晶粒长大

利用局部退火条件下线性温度梯度方法^[4],获得梯度指数不同且平均晶粒尺寸相同(平均晶粒半径 $R_0=13$ gp)的3种梯度微结构,如图8所示。其中,梯度指数是系统底部与顶部区域平均晶粒尺寸的比值。由图8可见,系统顶部的晶粒细小均匀,而系统底部的晶粒较粗大,且梯度指数越大,系统底部晶粒的平直晶界就越多,夹角趋于稳定值120°的三叉晶界也越多。

为研究梯度微结构的晶粒长大行为,对具有不同梯度指数的微结构进行均匀退火处理,即进行正常晶粒演化,所得结果如图9所示。可见,晶粒发生了不同程度的长大,其中越靠近系统顶部的晶粒,长大现

象就越明显。这是因为系统顶部的晶粒细小,晶界曲率大,晶界多,使得晶粒长大的驱动力大,晶粒长大速度快;而系统底部的晶粒粗大,大部分晶界已趋于直线,晶粒长大的驱动力较小,因此晶粒长大速度缓慢。

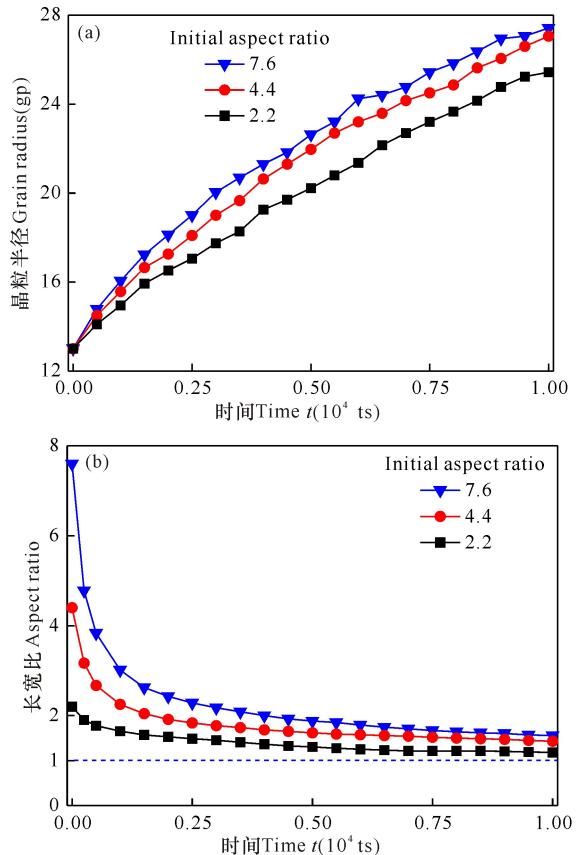
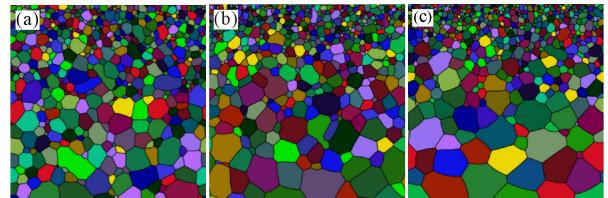


图 7 柱状微结构的平均晶粒尺寸(a)和长宽比(b)与演化时间的关系

Fig. 7 Changes of average grain size (a) and aspect ratio (b) of columnar microstructure with time



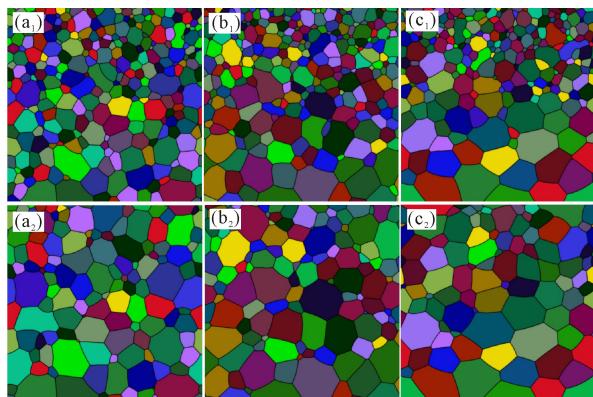
(a)Gradation index = 3.2; (b)Gradation index = 5.3;
(c)Gradation index = 8.4

图 8 3 种不同梯度指数的初始微结构

Fig. 8 Initial microstructures with three different gradation indexes

图10为3种梯度微结构的平均晶粒尺寸和梯度指数随模拟时间的变化曲线。由图10a可见,平均晶粒尺寸随演化时间的增加而增大,且初始梯度指数越大,晶粒尺寸增长越快。从图10b可以看出,随着演化时间的增加,3种梯度微结构的梯度指数均逐渐减小,且减小幅度随初始梯度指数的增大而增大。这归因于晶粒长大过程遵循抛物线长大规律,晶粒生长率

随晶粒尺寸的增加而减小,导致系统底部的小晶粒比顶部的大尺寸晶粒长得更快,使得梯度指数减小。



(a₁)~(c₁) 2×10^3 ts; (a₂)~(c₂) 1×10^4 ts; (a₁),(a₂)

Initial gradation index = 3.2; (b₁),(b₂) Initial gradation index=5.3; (c₁),(c₂) Initial gradation index=8.4

图 9 3 种初始梯度指数的梯度微结构的演化过程

Fig. 9 Evolution process of graded microstructures with three different initial gradation indexes

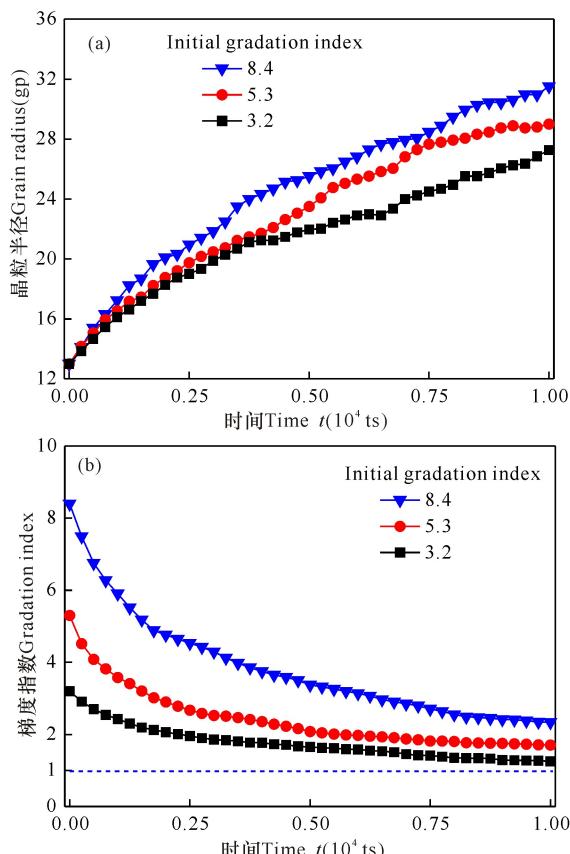


图 10 梯度微结构的平均晶粒尺寸(a)和梯度指数(b)随演化时间的变化

Fig. 10 Changes of average grain size (a) and gradation index (b) of graded microstructure with time

3 结论

本研究采用相场法研究二维多晶材料中正常晶

粒长大及初态分别为柱状和梯度微结构的晶粒长大过程。研究结果表明,晶粒长大是大晶粒吞噬相邻小晶粒的过程,在此过程中晶界长度不断减小,遵循能量降低原则;正常晶粒长大过程中相对晶粒尺寸分布具有时间不变性特点;柱状微结构的长宽比和梯度微结构的梯度指数均直接影响晶粒长大动力学,这两种初始微结构在演化过程中均向均匀等轴微结构转变;晶界曲率显著影响晶粒长大过程,曲率越大,晶粒长大就越快。

参考文献:

- [1] MEYERS M A, CHAWLA K K. Mechanical Behavior of Materials [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2009.
- [2] GEERS M G D, YVONNET J. Multiscale modeling of microstructure-property relations [J]. MRS Bulletin, 2016, 41(8): 610-616.
- [3] HOLM E A, FOILES S M. How grain growth stops: A mechanism for grain-growth stagnation in pure materials [J]. Science, 2010, 328(5982): 1138-1141.
- [4] GODFREY A W, MARTIN J W. Some Monte Carlo studies of grain growth in a temperature gradient [J]. Philosophical Magazine A, 1995, 72(3): 737-749.
- [5] WILLIAMSON A, DELPLANQUE J P. Strain energy limitations in Monte Carlo Potts modeling of grain growth [J]. Computational Materials Science, 2015, 108: 48-55.
- [6] HE Y Z, DING H L, LIU L F, et al. Computer simulation of 2D grain growth using a cellular automata model based on the lowest energy principle [J]. Materials Science and Engineering: A, 2006, 429(1/2): 236-246.
- [7] RAGHAVAN S, SAHAY S S. Modeling the topological features during grain growth by cellular automaton [J]. Computational Materials Science, 2009, 46(1): 92-99.
- [8] CHEN L Q, YANG W. Computer simulation of the domain dynamics of a quenched system with a large number of nonconserved order parameters: The grain-growth kinetics [J]. Physical Review B, 1994, 50(21): 15752-15756.
- [9] CHEN L Q, FAN D N. Computer simulation model for coupled grain growth and Ostwald Ripening-application to Al_2O_3 - ZrO_2 two-phase systems [J]. Journal of the American Ceramic Society, 1996, 79(5): 1163-1168.
- [10] KAZARYAN A, WANG Y, DREGIA S A, et al. Grain growth in systems with anisotropic boundary mobility: Analytical model and computer simulation [J]. Physical Review B, 2001, 63(18): 184102.

(下转第 442 页 Continue on page 442)

- [6] ELDER K R, GRANT M. Modeling elastic and plastic deformations in nonequilibrium processing using phase field crystals [J]. Physical Review E, 2004, 70 (5): 051605.
- [7] STEFANOVIĆ P, HAATAJA M, PROVATAS N. Phase field crystal study of deformation and plasticity in nanocrystalline materials [J]. Physical Review E, 2009, 80(4):046107.
- [8] BERRY J, GRANT M, ELDER K R. Diffusive atomistic dynamics of edge dislocations in two dimensions [J]. Physical Review E, 2006, 73(3):031609.
- [9] 杨涛,陈铮,董卫平.应力诱发双位错组亚晶界湮没的晶体相场模拟[J].金属学报,2011,47(10):1301-1306.
YANG T, CHEN Z, DONG W P. Phase field crystal simulation of stress-induced annihilation of sub-grain boundary with double-array dislocation [J]. Acta Metallurgica Sinica, 2011, 47(10): 1301-1306.
- [10] 高英俊,王江帆,罗志荣,等.晶体相场方法模拟纳米孪晶结构[J].计算物理,2013,30(4):577-581.
GAO Y J, WANG J F, LUO Z R, et al. Nano-twin structure simulation with phase field crystal method [J]. Chinese Journal of Computational Physics, 2013, 30(4):577-581.
- [11] 高英俊,罗志荣,黄创高,等.晶体相场方法研究二维六角相向正方相结构转变[J].物理学报,2013,62(5):050507.
GAO Y J, LUO Z R, HUANG C G, et al. Phase-field-crystal modeling for two-dimensional transformation from hexagonal to square structure [J]. Acta Physica Sinica, 2013, 62(5): 050507.
- [12] 高英俊,罗志荣,黄礼琳,等.韧性材料的微裂纹扩展和连通的晶体相场模拟[J].中国有色金属学报,2013,23(7):1892-1899.
GAO Y J, LUO Z R, HUANG L L, et al. Phase-field-crystal modeling for microcrack propagation and con-
- necting of ductile materials [J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2013, 23(7): 1892-1899.
- [13] 罗志荣,黄世叶,茹谢辛,等.晶体相场法模拟大角度晶界的变形过程[J].广西科学,2013,20(4):311-315.
LUO Z R, HUANG S Y, RU X X, et al. Phase field crystal modeling for deformation process of high-angle grain boundaries [J]. Guangxi Sciences, 2013, 20 (4): 311-315.
- [14] 卢成健,蒋丽婷,王玉玲,等.晶体相场法模拟小角度晶界的位错结构及其演化[J].广西科学,2013,20(4):316-320.
LU C J, JIANG L T, WANG Y L, et al. Simulating structure of dislocation and its evolution in low angle grain boundary by phase field crystal method [J]. Guangxi Sciences, 2013, 20(4): 316-320.
- [15] 毛鸿,罗志荣,黄世叶,等.材料裂纹扩展分叉机理的晶体相场法研究[J].广西科学,2015,22(5):499-505.
MAO H, LUO Z R, HUANG S Y, et al. Phase-field-crystal modeling for crack propagation and branch of materials [J]. Guangxi Sciences, 2015, 22(5): 499-505.
- [16] 高英俊,罗志荣,黄礼琳,等.变形合金的亚晶组织演化的相场模型[J].金属学报,2012,48(10):1215-1222.
GAO Y J, LUO Z R, HUANG L L, et al. Phase field model for microstructure evolution of subgrain in deformation alloy [J]. Acta Metallurgica Sinica, 2012, 48 (10): 1215-1222.
- [17] 高英俊,罗志荣,胡项英,等.相场方法模拟AZ31镁合金的静态再结晶过程[J].金属学报,2010,46(10):1161-1172.
GAO Y J, LUO Z R, HU X Y, et al. Phase field simulation of static recrystallization for AZ31 Mg alloy [J]. Acta Metallurgica Sinica, 2010, 46(10): 1161-1172.

(责任编辑:尹 阖)

(上接第 436 页 Continue from page 436)

- [11] KRILL III C E, CHEN L Q. Computer simulation of 3-D grain growth using a phase-field model [J]. Acta Materialia, 2002, 50(12):3059-3075.
- [12] 魏承炀,李赛毅.温度梯度对晶粒生长行为影响的相场模拟[J].物理学报,2011,60(10):132-139.
WEI C Y, LI S Y. Effect of temperature gradient on grain growth behavior from phase field simulations [J]. Acta Physica Sinica, 2011, 60(10): 132-139.
- [13] KURTZ S K, CARPAY F M A. Microstructure and normal grain growth in metals and ceramics. Part II. Experiment [J]. Journal of Applied Physics, 1980, 51 (11):5745-5754.

- [14] LOUAT N P. On the theory of normal grain growth [J]. Acta Metallurgica, 1974, 22(6):721-724.
- [15] SAHAY S S, MALHOTRA C P, KOLKHEDE A M. Accelerated grain growth behavior during cyclic annealing [J]. Acta Materialia, 2003, 51(2):339-346.
- [16] SAHAY S S, KUMAR B V H, KRISHNAN S J. Microstructure evolution during batch annealing [J]. Journal of Materials Engineering and Performance, 2003, 12 (6):701-707.

(责任编辑:陆 雁)